

18 MAR 2004

WIPO

PCT

PCT/JP 2004/000881

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

30.1.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日            2 0 0 3 年   1 月 3 1 日  
Date of Application:

出 願 番 号            特 願 2 0 0 3 - 0 2 4 6 0 0  
Application Number:  
[ST. 10/C] :            [ J P 2 0 0 3 - 0 2 4 6 0 0 ]

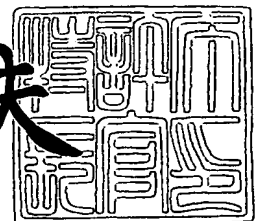
出      願      人  
Applicant(s):            三井・デュポンポリケミカル株式会社  
                             東セロ株式会社

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 4 年   3 月   4 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号    出証特 2 0 0 4 - 3 0 1 6 4 8 7

【書類名】 特許願

【整理番号】 P807DP068

【あて先】 特許庁長官 殿

【発明者】

    【住所又は居所】 千葉県市原市有秋台西 2-4-1

    【氏名】 佐藤 正史

【発明者】

    【住所又は居所】 茨城県猿島郡総和町北利根 9 番地 東セロ株式会社内

    【氏名】 田口 栄一

【特許出願人】

    【識別番号】 000174862

    【氏名又は名称】 三井・デュポンポリケミカル株式会社

【特許出願人】

    【識別番号】 000220099

    【氏名又は名称】 東セロ株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100075524

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 中嶋 重光

【選任した代理人】

    【識別番号】 100070493

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 山口 和

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 059846

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

    【物件名】 明細書 1

    【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9807359

【包括委任状番号】 9813121

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 易開封性樹脂組成物及びその用途

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 プロピレン系重合体 (A) 5～65 重量%、密度が  $895 \text{ kg/m}^3$  未満のエチレン・ $\alpha$ -オレフィンランダム共重合体 (B) 1～35 重量%及び密度が  $895 \text{ kg/m}^3$  以上のエチレン系重合体 (C) 10～85 重量% (全体で 100 重量%) とのエチレン系重合体組成物 (D) からなることを特徴とする易開封性樹脂組成物。

【請求項 2】 プロピレン系重合体 (A) が、プロピレン・ $\alpha$ -オレフィンランダム共重合体である請求項 1 記載の易開封性樹脂組成物。

【請求項 3】 エチレン・ $\alpha$ -オレフィンランダム共重合体 (B) が、炭素数 4 以上の  $\alpha$ -オレフィンとのランダム共重合体で、X線による結晶化度が 5～40% の範囲にあるエチレン・ $\alpha$ -オレフィンランダム共重合体である請求項 1 記載の易開封性樹脂組成物。

【請求項 4】 エチレン系重合体 (C) が、密度が  $895 \sim 940 \text{ kg/m}^3$  の低密度ポリエチレン若しくは密度が  $945 \sim 970 \text{ kg/m}^3$  の高密度ポリエチレンである請求項 1 記載の易開封性樹脂組成物。

【請求項 5】 エチレン系重合体組成物 (D) 100 重量部に対して無機充填剤を 10 重量部以下の割合で配合してなる請求項 1 記載の易開封性樹脂組成物。

【請求項 6】 請求項 1～5 の何れかに記載の易開封性樹脂組成物からなるプロピレン系重合体用熱融着材料。

【請求項 7】 請求項 1～5 の何れかに記載の易開封性樹脂組成物からなる熱融着性フィルム。

【請求項 8】 請求項 7 記載の熱融着性フィルムの片面にラミネート層が積層されてなる熱融着性積層フィルム。

【請求項 9】 ラミネート層がプロピレン単独重合体からなる請求項 8 記載の熱融着性積層フィルム。

【請求項 10】 請求項 7 記載の熱融着性フィルムの片面に、直接又はラミ

ネート層を介して基材層が積層されてなる熱融着性積層フィルム。

【請求項 11】 請求項 8 若しくは 10 記載の熱融着性積層フィルムからなる容器蓋材。

【請求項 12】 請求項 8～10 の何れかに記載の熱融着性積層フィルムとプロピレン系重合体層を有する被着部とからなり、該積層フィルムとプロピレン系重合体層間の熱シール構造を有することを特徴とする包装体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、種々の材料に対し、優れた密封性と易開封性を示す耐熱性、耐油性に優れた易開封性樹脂組成物及びその用途に関する。とりわけプロピレン系重合体層との易剥離性、開封時のソフト感、耐ブロッキング性、衛生性、製膜加工性、ラミネート加工性等に優れた易開封性樹脂組成物、及びそれから構成される熱融着性フィルムや熱融着性積層フィルム、さらには該熱融着性積層フィルムからなる蓋材及びそれを用いた包装体に関する。

【0002】

【従来の技術】

せんべい、ポテトチップス等のスナック菓子包装、あるいはゼリー、ミルク、ヨーグルト、プリン、豆腐、乳酸飲料等の食品包装や、ブリスター包装、その他、医薬品、医療器具、日用品、雑貨等の包装として、ボトル、カップ乃至トレイ状のプラスチック容器をプラスチックラミネートフィルム乃至アルミ箔ラミネートフィルムからなる蓋材でシールした包装が広く採用されている。このような包装に要求されることは、流通経路に耐える機械的な強度、衛生性の保持ができるシール強度及び使用時における開封性の良さである。

【0003】

そのような包装に使われる資材の一つとして、一方を易開封性（易剥離性、イージーピール性）フィルムと呼ばれる範疇のフィルムを、最内層である熱融着層とした袋に、あるいは蓋材に用いた包装体が広く利用されている。しかし、これまで提案されている各種の熱融着層は、密封するためのヒートシール強度は高い

が、開封時のイージーピール性は必ずしも十分ではなく、両者の間に適度なバランスをとることが求められている。ここでイージーピール性に求められている特性は、単に開封性の容易さのみならず、開封後に開封部に糸曳き現象等による樹脂断片の付着残留物がなく、開封部の外観の良さをも含めた総合評価であり、それによってその良否が判定されている。

#### 【0004】

かかる易開封性（易剥離性）を有するフィルムとして、例えば、易剥離層をポリプロピレン系樹脂とポリエチレン樹脂との混合物層と高密度ポリエチレン樹脂層とからなる易開封性包装体（特許文献1参照）、ポリプロピレンとポリエチレンとの混合樹脂からなる接着剤層（易剥離層）と支持層（ラミネート層）からなるポリプロピレン容器の蓋材シーラントフィルム（特許文献2参照）、エチレン- $\alpha$ オレフィン共重合体、プロピレン-エチレン共重合体及び低密度ポリエチレンからなる易開封性ヒートシール用樹脂組成物（特許文献3参照）、ポリプロピレン系樹脂、密度が $930\text{ kg/m}^3$ 以下のエチレン- $\alpha$ -オレフィンランダム共重合樹脂及びポリエチレン樹脂組成物からなるシール層を有する多層シート（特許文献4参照）等、数多く提案されている。しかしながら、単にポリプロピレン系樹脂とポリエチレン樹脂との混合物層を熱融着層としたフィルムは、未だ密封性と易開封性のバランスの点で必ずしも満足できるものではない。

#### 【0005】

とくに近年、包装容器素材として透明性、耐熱性、衛生性、強度、コストなどを勘案してプロピレン系重合体が多用されるようになってきており、また内容物の種類によっては、包装充填後に高温滅菌処理することが行なわれるようになってきている。そのためプロピレン系重合体に対して、密封性と易開封性のバランスが優れると共に、耐熱性に優れる、すなわち高温滅菌処理時の包装体内部の空気膨張に耐えるシール強度を保有し、しかも高温処理によるシール強度の変動が少ないという易開封性熱融着材料が強く求められているが、上記各提案のものはこれら要請に応えるものではなかった。

#### 【0006】

##### 【特許文献1】

特公平 5-64593 号公報

【特許文献 2】

特公平 5-6513 号公報

【特許文献 3】

特開平 2-185547 号公報

【特許文献 4】

特開 2000-355358 号公報

【0007】

【発明が解決しようとする課題】

そこで本発明者らは、上記要求性能を全て満足し、とくにプロピレン系重合体に対して密封性、易開封性、開封時の外観に優れ、ヒートシール強度の温度依存性が少なく、また高温滅菌処理によってもシール強度の変動が少ない易開封性熱融着材料を開発すべく検討を行なった。その結果、プロピレン系重合体とエチレン系重合体に特定のエチレン・ $\alpha$ -オレフィンランダム共重合体を添加したエチレン系重合体組成物を使用することにより、プロピレン系重合体層との易剥離性、開封時のソフト感、耐ブロッキング性、衛生性、製膜加工性、ラミネート加工性に優れた易剥離性熱融着材料が得られることが分かり、本発明に到達した。

【0008】

【課題を解決するための手段】

【発明の概要】

本発明は、プロピレン系重合体 (A) 5～65 重量%、密度が  $895 \text{ kg/m}^3$  未満のエチレン・ $\alpha$ -オレフィンランダム共重合体 (B) 1～35 重量%及び密度が  $895 \text{ kg/m}^3$  以上のエチレン系重合体 (C) 10～85 重量% (全体で 100 重量%) とのエチレン系重合体組成物 (D) からなることを特徴とする易開封性樹脂組成物、それからなる熱融着性フィルム、かかる熱融着性フィルムの片面にラミネート層及び／又は基材層が積層されてなる熱融着性積層フィルム及び容器蓋材に関する。

【0009】

【発明の具体的説明】

### プロピレン系重合体 (A)

本発明に係わるプロピレン系重合体 (A) は、一般にポリプロピレンの名称で製造・販売されている樹脂で、通常、密度が  $890 \sim 930 \text{ kg/m}^3$  程度のプロピレンの単独重合体若しくはプロピレンと他の少量の  $\alpha$ -オレフィンとの共重合体である。共重合体においては、ランダム共重合体であってもブロック共重合体であってもよい。プロピレンの共重合体における他の  $\alpha$ -オレフィンとしては、エチレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-オクテン、1-デセン、4-メチル-1-ペンテンなどの炭素原子数が  $2 \sim 20$  程度の  $\alpha$ -オレフィンを例示することができる。このような他の  $\alpha$ -オレフィンは、1種単独で又は2種以上組合わせて共重合させてもよい。

#### 【0010】

これらプロピレン系重合体の中では、プロピレンと  $\alpha$ -オレフィンのランダム共重合体、とりわけプロピレンと炭素原子数が  $2 \sim 4$  の  $\alpha$ -オレフィンのランダム共重合体、例えばエチレン及び／又は1-ブテンの含量が20モル%以下、好ましくは10モル%以下のランダム共重合体を使用することが好ましい。また熱融着材料として十分な耐熱性を付与するためには、示差走査熱量計 (DSC) に基づく融点が  $125^\circ\text{C}$  以上、とくに  $130 \sim 170^\circ\text{C}$  の高結晶性のランダム共重合体であることが好ましい。また耐熱性、押出加工性などを考慮すると、メルトフローレート (MFR) (ASTM D1238、 $230^\circ\text{C}$ 、 $2160 \text{ g}$  荷重) が  $0.01 \sim 100 \text{ g/10分}$ 、好ましくは  $0.1 \sim 70 \text{ g/10分}$  のものを使用するのが好ましい。このようなプロピレン系重合体は、立体特異性触媒の存在下で、プロピレンを重合するかあるいはプロピレンと1種以上の他の  $\alpha$ -オレフィンを共重合することによって得ることができる。プロピレン系重合体 (A) としてはまた、2種以上組合せて使用することができる。

#### 【0011】

### エチレン・ $\alpha$ -オレフィンランダム共重合体 (B)

本発明に係わるエチレン・ $\alpha$ -オレフィンランダム共重合体 (B) は、密度が  $895 \text{ kg/m}^3$  未満、好ましくは  $875 \sim 890 \text{ kg/m}^3$  のエチレンと炭素数  $3 \sim 10$  の  $\alpha$ -オレフィン、例えばプロピレン、1-ブテン、1-ヘブテン、



1-ヘキセン、1-オクテン、4-メチル-1-ペンテンなど、好ましくは炭素数4以上、更に好ましくは4~10の $\alpha$ -オレフィンとのランダム共重合体である。ランダム共重合体(B)としてはまた、樹脂組成物の熱融着特性を考慮すると、好ましくはエチレン含有量が70~95モル%、更に好ましくは80~93モル%、特に好ましくは85~93モル%の範囲にあり、X線による結晶化度が好ましくは40%以下、より好ましくは5~40%、更に好ましくは7~30%の範囲にあり、ゲル浸透クロマトグラフィー(GPC)で測定した分子量分布(重量平均分子量(Mw)/数平均分子量(Mn))が好ましくは3以下、更に好ましくは2.5以下であり、好ましくは示差走査熱量計(DSC)による昇温速度10℃/分での吸熱曲線から求めた融点が40~100℃、更に好ましくは60~90℃のものが好適である。ランダム共重合体(B)としてはさらに樹脂組成物の加工性、耐油性等を考慮すると、MFR(ASTM D1238、190℃、2160g荷重)が、好ましくは0.01~20g/10分、更に好ましくは0.1~10g/10分の範囲のものが好適である。このような共重合体は、例えば遷移金属化合物触媒成分、例えばバナジウム化合物やジルコニウム化合物と、有機アルミニウム化合物触媒成分とからなる触媒を用いて、エチレンと $\alpha$ -オレフィンを共重合することによって得ることができる。これらランダム共重合体(B)は、2種以上組み合わせて使用することができる。

#### 【0012】

##### エチレン系重合体(C)

本発明に係わるエチレン系重合体(C)は、密度が895kg/m<sup>3</sup>以上、好ましくは900~970kg/m<sup>3</sup>のエチレンの単独重合体若しくはエチレンと少量の炭素数が3~10の $\alpha$ -オレフィン、例えばプロピレン、1-ブテン、1-ヘプテン、1-ヘキセン、1-オクテン、4-メチル-1-ペンテンなどとのランダム共重合体であって、いわゆる、高圧法低密度ポリエチレン(HPLDPE)、直鎖状あるいは線状低密度ポリエチレン(LLDPE)、中密度ポリエチレン(MDPE)、高密度ポリエチレン(HDPE)と呼ばれているエチレン単独重合体若しくはエチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体、更にはエチレンと少量の極性モノマーとの共重合体、例えばエチレン・酢酸ビニル共重合体、エチレン

と不飽和カルボン酸、例えばアクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸モノエチル、無水マレイン酸などとの共重合体又はそのNa、Li、ZnもしくはMgなどのアイオノマー、エチレンと不飽和カルボン酸エステル、例えばアクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸イソブチル、アクリル酸n-ブチル、アクリル酸-2-エチルヘキシル、メタクリル酸メチル、メタクリル酸グリシジル、マレイン酸ジメチルなどとの共重合体、エチレンと上記のような不飽和カルボン酸と不飽和カルボン酸エステルの共重合体又はそのNa、Li、ZnもしくはMgなどのアイオノマー、エチレンと一酸化炭素と任意に不飽和カルボン酸エステルや酢酸ビニルとの共重合体等のエチレンを主体とした重合体である。これらエチレン系重合体(C)は、単一の重合体であっても、2種以上のエチレン系重合体との組成物(混合物)であってもよい。

#### 【0013】

エチレン系重合体(C)のMFR(ASTM D1238、190℃、2160g荷重)は、プロピレン系重合体(A)及びエチレン・ $\alpha$ -オレフィンランダム共重合体(B)と混合してエチレン系重合体組成物(D)にした際に、フィルム形成能がある限り特に限定はされないが、通常、0.01~100g/10分、好ましくは0.1~70g/10分の範囲にある。

#### 【0014】

かかるエチレン系重合体(C)としては、エチレンと $\alpha$ -オレフィンとの共重合体を使用することが好ましく、特に、密度が895~925kg/m<sup>3</sup>、好ましくは900~925kg/m<sup>3</sup>の低密度ポリエチレン、密度が925~940kg/m<sup>3</sup>の中密度ポリエチレン、若しくは密度が945~970kg/m<sup>3</sup>、好ましくは950~965kg/m<sup>3</sup>の高密度ポリエチレン好適である。

#### 【0015】

前記、線状低密度ポリエチレン(LLDPE)としては、ゲル透過クロマトグラフィー(GPC)によって測定した分子量分布(Mw/Mn)が通常1.5~4.0、好ましくは1.8~3.5の範囲にある。線状低密度ポリエチレン(LLDPE)はまた、示差走査熱量計(DSC)の昇温速度10℃/分で測定した吸熱曲線から求めた鋭い吸熱ピークが1個ないし複数個あり、該ピークの最高温

度、すなわち融点が通常70～130℃、好ましくは80～120℃の範囲にある。

#### 【0016】

上記のような線状低密度ポリエチレン (LLDPE) は、チーグラ型触媒を代表例とするマルチサイト触媒、メタロセン触媒を代表例とするシングルサイト触媒を用いた従来公知の製造法により調製することができる。たとえば線状低密度ポリエチレン (LLDPE) は、遷移金属のメタロセン化合物を含む触媒を用いて調製することができる。このメタロセン化合物を含む触媒は、(a) 遷移金属のメタロセン化合物と、(b) 有機アルミニウムオキシ化合物と、(c) 担体とから形成されることが好ましく、さらに必要に応じて、これらの成分と (d) 有機アルミニウム化合物および／または有機ホウ素化合物とから形成させてもよい。なお、このようなメタロセン化合物を含むオレフィン重合用触媒、および触媒を用いた線状低密度ポリエチレン (LLDPE) の調製方法は、たとえば特開平8-269270号公報に記載されている。

#### 【0017】

##### エチレン系重合体組成物 (D)

本発明のエチレン系重合体組成物 (D) からなる易開封性樹脂組成物は、前記プロピレン系重合体 (A) が5～65重量%、好ましくは10～60重量%、エチレン・ $\alpha$ -オレフィンランダム共重合体 (B) が1～35重量%、好ましくは5～30重量%及びエチレン系重合体 (C) が10～85重量%、好ましくは20～80重量%の割合で配合されるものである。かかる易開封性樹脂組成物はまた、押出加工性、シール強度、耐熱性等を考慮すると、MFR (ASTM D1238、190℃、2160 g 荷重) が0.01～100 g/10分、とくに0.1～70 g/10分となるように調製されていることが望ましい。

#### 【0018】

プロピレン系重合体 (A) の配合量が5重量%未満では、得られる熱融着性フィルムをプロピレン系重合体層と熱融着した際に、シール強度が弱くなり、また耐熱性も低下する。またその配合量が65重量%を越えると、広範囲なシール温度領域において適正なシール強度を示さなくなる。

## 【0019】

また上記エチレン・ $\alpha$ -オレフィンランダム共重合体 (B) の配合量が1重量%未満では、得られる熱融着性フィルムをプロピレン系重合体層と熱融着した際に、シール性、糸曳き性等が劣る傾向にあり、一方35重量%を越えると加工性が損なわれるようになる。

## 【0020】

さらにエチレン系重合体 (C) の配合量が10重量%未満では、得られる熱融着性フィルムをプロピレン系重合体層と熱融着した際に、シール強度が強くなりすぎて易開封性に劣るようになり、一方85重量%を越える程多量に配合するとシール強度が弱くなる傾向にある。

## 【0021】

本発明の易開封性樹脂組成物には、本発明の目的を損なわない範囲で各種添加剤を配合することができる。かかる添加剤としてシリカ、タルクなどの無機充填剤、酸化防止剤、耐候安定剤、帯電防止剤、防曇剤、アンチブロッキング剤、スリップ剤、顔料等を挙げることができる。とくにエチレン系重合体組成物 (D) 100重量部に対して、無機充填剤を10重量部以下、好ましくは0.1~5重量部程度配合することにより、押出加工性、フィルムの滑り性、離ロール性などが改良されるので好ましい。また有機化合物型のアンチブロッキング剤やスリップ剤等の配合もフィルム成形時、ラミネート加工時、包装作業時等における加工性や作業性の向上に有効である。このような有機化合物型のアンチブロッキング剤やスリップ剤として、例えばパルミチン酸アミド、ステアリン酸アミド、ベヘニン酸アミド、オレイン酸アミド、エルカ酸アミド、オレイルパルミドアミド、ステアシルパルミドアミド、メチレンビスステアシルアミド、メチレンビスオレイルアミド、エチレンビスオレイルアミド、エチレンビスエルカ酸アミドなどの各種アミド類、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコールなどのポリアルキレングリコール、水添ひまし油などを例示することができる。これらの適当な配合量は、エチレン系重合体組成物 (D) 100重量部に対して、0.01~1重量部程度である。上記のような各種添加剤は、エチレン系重合体組成物の調製時に配合することができるし、予めプロピレン系重合体 (A)、エチレン・

$\alpha$ -オレフィンランダム共重合体 (B) 及びエチレン系重合体 (C) などの各成分に配合しておくことができる。

#### 【0022】

本発明の易開封性樹脂組成物は、プロピレン系重合体 (A)、エチレン・ $\alpha$ -オレフィンランダム共重合体 (B) 及びエチレン系重合体 (C) の各成分、及び任意に配合される添加剤を、同時に又は逐次的に混合することによって調製することができる。この樹脂組成物の調製に際しては、単軸押出機、二軸押出機、バンバリーミキサー、各種ニーダーなどを用いて溶融混合するのが好ましく、その混合順序にとくに制限は無い。

#### 【0023】

##### 熱融着性フィルム

本発明の熱融着性フィルムは、上記易開封性樹脂組成物からなるフィルムである。かかる熱融着性フィルムは、種々公知の方法で製造できる。例えば、プロピレン系重合体 (A)、エチレン・ $\alpha$ -オレフィンランダム共重合体 (B) 及びエチレン系重合体 (C) とを所定割合で混合した後、直接フィルム成形機に投入してT-ダイ、環状ダイ等を用いてフィルムにする方法、予めプロピレン系重合体 (A)、エチレン・ $\alpha$ -オレフィンランダム共重合体 (B) 及びエチレン系重合体 (C) とを所定の量で混合して押出機等で溶融混練して易開封性樹脂組成物を得た後、T-ダイ、環状ダイ等を用いてフィルム成形する方法が例示できる。

#### 【0024】

熱融着性フィルムの厚さは、用途に応じて適宜決め得るが、通常1～1000  $\mu\text{m}$ 、好ましくは2～100  $\mu\text{m}$ の範囲にある。

#### 【0025】

本発明の熱融着性フィルムは印刷性あるいは基材層等との接着性を改良するために、熱融着性フィルムの表面を、たとえば、コロナ処理、火炎処理、プラズマ処理、アンダーコート処理等で表面活性化処理を行っておいてもよい。

#### 【0026】

##### 熱融着性積層フィルム

本発明の熱融着性積層フィルムは、上記易開封性樹脂組成物からなる熱融着性

フィルムの片面に、ラミネート層及び／又は基材層が積層されてなる。本発明におけるラミネート層とは、他の熱可塑性樹脂を前記易開封性樹脂組成物と共押出し成形して得られる熱融着性積層フィルムの他の熱可塑性樹脂からなる層であり、得られる熱融着性積層フィルムはそのままでも蓋材として使用できるし、さらに基材層と積層する場合は、かかる層と積層される。ラミネート層を構成する熱可塑性樹脂としては、上記プロピレン系重合体(A)やエチレン系重合体(C)として例示した各種ポリオレフィン系樹脂を使用することができる。またこれら各種ポリオレフィン系樹脂と上記本発明の易開封性樹脂組成物との任意割合の組成物を使用することができる。

#### 【0027】

とくに本発明の熱融着性積層フィルムをT-ダイ成形法で得る場合は、前記易開封性樹脂組成物は単独では高速製膜性(高速フィルム成形能)に劣る場合があり、その場合は、他の熱可塑性樹脂、好ましくは上記プロピレン系重合体(A)あるいはエチレン系重合体(C)等のポリオレフィン系樹脂、とくにプロピレン単独重合体とを共押出し成形することにより、より高速下でフィルム成形が可能となる。そしてかかるプロピレン単独重合体から形成されるラミネート層を有する熱融着性積層フィルムは、透明性、滑り性に優れ、蓋材として使用して包装体を高温殺菌処理しても十分なシール強度を有し、かつシール強度の低下がなく、また被包装物を取り出す際には開封し易い適度な易開封性(イージーピール性)を有する。このようなラミネート層は、1層でも2層以上の多層としてもよく、多層の場合は各層で使用する熱可塑性樹脂の種類や性状を異にすることができる。ラミネート層として好適なプロピレン系重合体は、MFR(ASTM D1238、230℃、2160g荷重)が0.01~100g/10分、特に0.1~70g/10分の範囲にある。

#### 【0028】

本発明の熱融着性積層フィルムは、上記熱融着性フィルム層とラミネート層からなる積層フィルム、上記熱融着性フィルム層と基材層とからなる積層フィルムあるいは上記熱融着性フィルム層とラミネート層(中間層)と基材層とからなる積層フィルムである。基材層としては、機械的強度、剛性、外観等が優れたもの

が好ましく、例えば、ポリエチレンテレフタレートに代表されるポリエステルフィルム、ポリアミドフィルム、ポリエチレンフィルム、ポリプロピレンフィルム等の熱可塑性樹脂製フィルム、アルミ蒸着ポリプロピレンフィルム、シリカ蒸着ポリエステルフィルムなどの複合フィルム、アルミ箔、紙等が挙げられる。かかる熱可塑性樹脂製フィルムあるいは複合フィルムとしては、無延伸であっても一軸あるいは二軸延伸のフィルムであってもよく、あるいは一般にはシートと呼ばれるような厚手のフィルム、その他扁平状基材であっても良い。勿論、基材層は、1層でも2層以上としてもよく、2層以上の場合においては、異種材料や性状の異なる同種材料を組み合わせ使用することができる。

#### 【0029】

ラミネート層を有する熱融着性積層フィルムにおいては、印刷性あるいは基材層等との接着性を改良するために、ラミネート層の表面を、例えば、コロナ処理、火炎処理、プラズマ処理、アンダーコート処理等で表面活性化処理を行っていてもよい。

#### 【0030】

本発明の熱融着性積層フィルムは、種々公知の方法で製造し得る。例えば、ラミネート層及び／又は基材層が熱可塑性樹脂である場合には、熱融着層となる易開封性樹脂組成物とラミネート層及び／又は基材層に用いる樹脂とを多層ダイを用いて共押出しし、熱融着性積層フィルムとしても良い。又、予め得られた基材層に易開封性樹脂組成物あるいは易開封性樹脂組成物とラミネート層を形成する熱可塑性樹脂とを押出しあるいは共押出しラミネートもしくは押出しあるいは共押出しコーティングして熱融着性積層フィルムとしても良いし、あるいは夫々別個に得たフィルムと熱融着性フィルム（熱融着性積層フィルム）とを貼り合せて熱融着性積層フィルムとしても良い。

#### 【0031】

本発明の熱融着性積層フィルムの厚さは、用途に応じて適宜決め得るが、通常、熱融着性フィルム（熱融着層）の厚さが、1～1000 $\mu$ m、好ましくは2～100 $\mu$ m、ラミネート層の厚さが、19～9000 $\mu$ m、好ましくは18～900 $\mu$ m、ラミネート層が2層の場合は、中間層が18～8000 $\mu$ m、好まし

くは $16\sim 800\mu\text{m}$ 、外層が $1\sim 1000\mu\text{m}$ 、好ましくは $2\sim 100\mu\text{m}$ の範囲にあり、又、基材層を有する場合は、基材層の厚さは通常、 $5\sim 100\mu\text{m}$ 、好ましくは $9\sim 50\mu\text{m}$ の範囲にある。熱融着性積層フィルムの全体の厚さが通常、 $20\sim 10000\mu\text{m}$ 、好ましくは $20\sim 1000\mu\text{m}$ の範囲にある。

#### 【0032】

##### 容器蓋材

上記熱融着性フィルムあるいは熱融着性積層フィルムは各種包装材料として使用することができる。好適な包装材料の例として、熱融着性フィルム層を容器最内層として用いる容器蓋材がある。容器蓋材として用いる場合は、前記製法で得た熱融着層を備えた単層あるいは多層の熱融着性（積層）フィルム（シートを含む）をそのまま蓋材として用いても良いし、印刷して用いても良い。更に印刷されたあるいはされていない紙、アルミ箔等と貼り合せて蓋材にしても良い。又、用途によっては予め容器形状に合わせてカットして蓋材にしても良い。容器蓋材とする場合には、基材層を設けた熱融着性積層フィルムを使用するのが好ましい。

#### 【0033】

##### 被着体

本発明の易開封性樹脂組成物あるいは熱融着性（積層）フィルムは、各種被着体に熱融着させることにより熱シール層を形成させることができる。このような被着体としてプロピレン系重合体、ポリスチレン、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリ塩化ビニル等を例示することができる。これら被着体は、フィルム、シート、トレイ、カップ、ボトル等、種々の形状のものであることができる。この中では特にプロピレン系重合体を被着体とすると、熱シール層の密封性、易開封性、耐熱性、耐油性などに優れており好ましい。かかるプロピレン系重合体は、エチレン系重合体組成物（D）に用いるプロピレン系重合体（A）と同一の範疇のものであるが、個々の物性は同一であっても異なってもよい。例えばプロピレン系重合体からなる被着体においては、被包装材料に合わせてプロピレン系重合体を公知の方法でフィルム、シート、トレイ、カップ、ボトル等の種々の形状に成形したものを使用することができる。フィルム若しくはシートの場合は



、上記熱融着性フィルムと同様な方法で製造し得る。トレー若しくはカップの場合は、一旦上記方法でシートを製造した後、真空成形、圧空成形等の熱成形によりトレー、カップ等の容器とすることにより製造し得る。又、カップあるいはボトルの場合は射出成形、射出中空成形（インジェクションブロー）、中空成形等により容器として成形し得る。

#### 【0034】

##### 包装体

本発明の易開封性樹脂組成物あるいは熱融着性（積層）フィルムを包装材料として使用する場合、熱融着性（積層）フィルムそのものを、例えば、折りたたんで三方シールしたり、2枚の熱融着性（積層）フィルムを四方シールして包装体としてもよいし、熱融着性（積層）フィルムを上記各種被着体と熱シール層を形成して包装体を形成してもよい。本発明の包装体の形状は、被包装材料の形状、形態あるいは用途に応じて種々の形状を取り得る。例えば、フレキシブルな軟包装体としては、熱融着性積層フィルムとプロピレン系重合体層からなる熱シール層を備えたフィルムとからなる三方シール袋に被包装材料を充填した後、口部をヒートシールしてなる四方シール包装体、プロピレン系重合体層からなる熱シール層を備えたシート、トレー、カップ、ボトル等に、被包装材料を充填した後、熱融着性積層フィルムの熱融着層を最内層としてなる蓋材（シール材）で上面をシールしてなる包装体等が挙げられる。

#### 【0035】

##### 【発明の効果】

本発明のプロピレン系重合体（A）、エチレン・ $\alpha$ -オレフィンランダム共重合体（B）及びエチレン系重合体（C）とのエチレン系重合体組成物である易開封性樹脂組成物は、易開封性熱融着材料、とくに包装材料の易開封性熱融着材料、とりわけプロピレン系重合体に対する易開封性熱融着材料として好適である。また本発明の易開封性樹脂組成物は、それ自体、耐ブロッキング性、衛生性、製膜加工性、ラミネート加工性に優れており、又、かかる易開封性樹脂組成物からなる熱融着層を備えた熱融着性（積層）フィルムをプロピレン系重合体層と熱融着した場合、幅広い温度領域で安定したヒートシール強度（剥離強度）を有し、

且つ剥離時（開封時）に容易に剥離でき、しかもソフト感を有している。したがって、かかる特徴を活かして、包装用フィルムとして、特に、ポリプロピレン製のシート、トレイ、カップ、ボトル等の蓋材として好適であり、せんべい、ポテトチップス等のスナック菓子包装、あるいはゼリー、ミルク、ヨーグルト、プリン、豆腐、乳酸飲料等の食品包装や、医薬品、医療用器具等の包装、ブリストア包装、その他日用品や雑貨等の包装の包装材料として好適に用いることができる。

### 【0036】

#### 【実施例】

次に実施例を挙げて本発明を更に具体的に説明するが、本発明はその趣旨を越えない限りこれらの実施例に制約されるものではない。尚、実施例及び比較例において用いた原料は、以下の通りである。

### 【0037】

#### 〔原料〕

#### (1) プロピレン系重合体 (A)

PP: プロピレン・エチレン・1-ブテンランダム共重合体 (エチレン含有量; 3.6モル% (2.4重量%)、1-ブテン含有量; 1.9モル% (2.5重量%)、密度;  $910 \text{ kg/m}^3$ 、MFR (230℃);  $6 \text{ g/10分}$ )

#### (2) エチレン・ $\alpha$ -オレフィンランダム共重合体 (B)

VL: エチレン・1-ブテンランダム共重合体 (密度;  $886 \text{ kg/m}^3$ 、エチレン含有量; 89.1モル%、結晶化度; 10%、融点; 69℃、MFR (190℃);  $4.0 \text{ g/10分}$ )

#### (3) エチレン系重合体 (C)

LL-1: 直鎖低密度ポリエチレン (密度  $915 \text{ kg/m}^3$ 、MFR (190℃)  $2.0 \text{ g/10分}$ )

LL-2: 直鎖低密度ポリエチレン (メタロセン触媒、密度  $915 \text{ kg/m}^3$ 、MFR (190℃)  $4.0 \text{ g/10分}$ )

LL-3: 直鎖低密度ポリエチレン (密度  $915 \text{ kg/m}^3$ 、MFR (190℃)  $15 \text{ g/10分}$ )

LL-4: 直鎖低密度ポリエチレン (メタロセン触媒、密度  $895 \text{ kg/m}^3$ 、MFR ( $190^\circ\text{C}$ )  $4.0 \text{ g/10分}$ )

LD: 高压法低密度ポリエチレン (密度  $923 \text{ kg/m}^3$ 、MFR ( $190^\circ\text{C}$ )  $3.7 \text{ g/10分}$ )

HD: 高密度ポリエチレン (密度  $954 \text{ kg/m}^3$ 、MFR ( $190^\circ\text{C}$ )  $1.1 \text{ g/10分}$ )

#### 【0038】

[実施例 1～9、比較例 1～4]

表 1 に示す配合組成のエチレン系重合体組成物から  $50 \mu\text{m}$  のインフレーションフィルムを作成し、これを予め作成した二軸延伸ポリエチレンテレフタレート (O-PET、厚さ  $12 \mu\text{m}$ ) / 低密度ポリエチレン (厚さ  $20 \mu\text{m}$ ) からなる 2 層構成の積層フィルムの低密度ポリエチレンフィルム面側に、低密度ポリエチレン (厚さ  $20 \mu\text{m}$ ) を接着層とするサンドイッチラミネーション法により積層し、試験基材を得た。

#### 【0039】

厚さ  $300 \mu\text{m}$  のポリプロピレンシートにこの試験基材をそのエチレン系重合体組成物面が当接するように重ね合わせ、 $160^\circ\text{C}$ 、圧力  $0.2 \text{ MPa}$ 、シール時間  $1.0$  秒の条件でヒートシールして積層体を得た。この積層体から試験基材部を剥離したときの剥離強度を測定した。また剥離状況として、剥離強度を測定したサンプルのシール部分の糸曳き状態を観察し、糸曳きなし～微少の状態を A、糸曳きの少ない状態を B、糸曳きの多い状態を C とした。これらの結果を表 1 に併記する。

#### 【0040】

【表 1】

実施例														比較例											
1														2				3				4			
原料重量部	PP	10	30	60	30	50	40	30	40	40	60	30	40	70											
	VL	10	10	10	30	10	30	10	10	10				10											
	LL-1	80	60	30	40			40			30	40		20											
	LL-2					40			40				40												
	LL-3							20				60													
	LL-4											10													
	LD								10																
	HD						30				20		20												
剥離強度(N/15mm)		28	18	20	29	20	29	28	28	26	39	25	27	33											
剥離状況		A	A	A	A	A	B	B	B	B	C	C	C	C											

【0041】

## [実施例 10]

熱融着層として、PP; 50重量%、VL; 10重量%及びLL-2; 40重量%とを予め溶融混練したエチレン系重合体組成物(D-5)を用い、ラミネート層として、中間層(中間ラミネート層)及び外層(表面ラミネート層)にプロピレン単独重合体(PP-1)(融点; 160℃、MFR(230℃); 7.0g/10分)を用い、夫々別々の押出機に供給し、T-ダイ法によって熱融着層/中間ラミネート層/表面ラミネート層となる構成の3層共押出フィルムからなる熱融着性積層フィルムを成形し、表面ラミネート層にコロナ処理を施した。フィルムの総厚みは30μmで、各層の厚みは熱融着層/中間ラミネート層/表面ラミネート層=3/24/3μmであった。

## 【0042】

厚さ12μmの二軸延伸ポリエチレンテレフタートフィルム(OPET)と、上記熱融着性積層フィルムのコロナ処理面とをウレタン系接着剤を用いてドライラミネーションにより積層して積層フィルムを準備した。厚さ300μmのポリプロピレンシートにこの積層フィルムを熱融着層が当接するように重ね合わせ、表2に記載の所定の温度で、幅5mmのシールバーを用い、0.2MPaの圧力で1秒間シールした後放冷した。これから15mm幅の試験片を切り取り、クロスベクト速度500mm/分でヒートシール部を剥離し、その強度を剥離強度(N/15mm)とした。またヒートシールした試験片を沸騰水に浸漬し、110℃で30分維持した後の剥離強度についても同様に測定した。また剥離強度を測定した試験片のシール部分の剥離状態と糸曳き状態を観察した。凝集剥離で糸曳きがないものを◎、界面剥離で糸曳きがないものを○、及び凝集剥離で糸曳きが多いものを×とした。

結果を表2に示す。

## 【0043】

## [実施例 11]

実施例10において、中間ラミネート層としてPP-1の代わりにプロピレン・エチレンランダム共重合体(PP-2)(融点143℃、MFR(230℃) 7.0g/10分)を使用した以外は、実施例10と同様にして熱融着性積層フ

イルムを作成し、そのヒートシール部の剥離特性を評価した。結果を表2に示す。

## 【0044】

## [実施例12～14]

実施例10において、中間ラミネート層として表2に示す組成のものを使用した以外は、実施例10と同様にして熱融着性積層フィルムを作成し、そのヒートシール部の剥離特性を評価した。結果を表2に示す。

## 【0045】

【表2】

		実施例				
		10	11	12	13	14
熱融着性積層フィルム構成（重量%）						
熱融着層		D-5	D-5	D-5	D-5	D-5
中間層		PP-1	PP-2	PP-1(50) D-5(50)	PP-1(70) D-5(30)	PP-1(60) D-5(40)
表面層		PP-1	PP-1	PP-1	PP-1	PP-1
剥離強度(N/15mm)と剥離状況（熱水処理前）						
ヒートシール 温度	140℃	13.3 ○	11.3 ○	10.8 ○	6.5 ○	11.0 ○
	160℃	17.9 ◎	17.6 ◎	16.2 ◎	15.5 ◎	15.8 ◎
	180℃	17.1 ◎	16.9 ◎	16.5 ◎	16.0 ◎	16.1 ◎
	200℃	19.0 ◎	24.2 ×	22.5 ×	16.4 ×	23.5 ×
剥離強度(N/15mm)と剥離状況（熱水処理後）						
ヒートシール 温度	140℃	12.2 ○	10.0 ○	10.1 ○	4.1 ○	9.8 ○
	160℃	17.1 ◎	17.4 ◎	16.1 ◎	14.8 ◎	15.5 ◎
	180℃	18.1 ◎	16.5 ◎	16.3 ◎	15.3 ◎	15.9 ◎
	200℃	18.9 ◎	24.0 ×	21.8 ×	16.0 ×	20.5 ×

## 【0046】

## [実施例 15]

熱融着層としてエチレン系重合体組成物 (D-5) を、中間ラミネート層として高密度ポリエチレン (HDPE) (三井化学 (株) 製、商品名; ハイゼックス 3300F、密度;  $954 \text{ kg/m}^3$ 、MFR ( $190^\circ\text{C}$ );  $1.1 \text{ g/10分}$ 、融点;  $131^\circ\text{C}$ ) 85重量%と高圧法低密度ポリエチレン (HP-LDPE) (三井化学 (株) 製、商品名; ミラソン 11P、密度;  $917 \text{ kg/m}^3$ 、MFR ( $190^\circ\text{C}$ );  $7.2 \text{ g/10分}$ 、融点;  $106^\circ\text{C}$ ) 15重量%をドライブレンドした組成物を、表面ラミネート層として直鎖低密度ポリエチレン (LLDPE) (三井化学 (株) 製、商品名; ウルトゼックス 1520L、密度;  $915 \text{ kg/m}^3$ 、MFR ( $190^\circ\text{C}$ );  $2.3 \text{ g/10分}$ 、融点;  $115^\circ\text{C}$ ) を用い、T-ダイ法によって熱融着層/中間ラミネート層/表面ラミネート層となる構成の3層共押出フィルムからなる熱融着性積層フィルムを成形し、表面ラミネート層にコロナ処理を施した。フィルムの総厚みは  $30 \mu\text{m}$  で、各層の厚みは熱融着層/中間ラミネート層/表面ラミネート層 =  $4.5/21.0/4.5 \mu\text{m}$  であった。

次いで得られた熱融着性積層フィルムを実施例 10 と同様に、厚さ  $12 \mu\text{m}$  の O-PET と積層して物性を評価した。結果を表 3 に示す。

【0047】

【表 3】

		実施例 1 5
熱融着性積層フィルム構成（重量%）		
熱融着層		D-5
中間層		HDPE(85) HP-LDPE(15)
表面層		LLDPE
剥離強度(N/15mm)と剥離状況（熱水処理前）		
ヒートシール 温度	140℃	13.0 ○
	160℃	21.0 ◎
	180℃	21.8 ◎
	200℃	22.5 ◎
剥離強度(N/15mm)と剥離状況（熱水処理後）		
ヒートシール 温度	140℃	13.7 ○
	160℃	20.5 ◎
	180℃	20.7 ◎
	200℃	21.6 ◎

## 【0048】

表2及び表3から明らかなように、ポリプロピレンシートに対するヒートシール特性はラミネート層の種類によっても若干影響は受けるが、適切なヒートシール条件を選択すればいずれも熱水処理後においてもヒートシール強度は変わらず、高温滅菌処理用の包装材料として有用であることがわかる。とくにラミネート層にプロピレン系重合体を使用した場合には、110℃を越えるような温度で熱水処理をしても透明性が低下することはないので、商品価値の高い包装体を得ることができる。またラミネート層にエチレン系重合体を使用した場合には、ヒートシールの許容温度幅の広い熱融着性積層フィルムとすることができる。



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 とくにポリプロピレン容器の蓋材として有用な、優れた密封性と易開封性を示す耐熱性、耐油性に優れた易開封性樹脂組成物を提供する。

【解決手段】 プロピレン系重合体 (A) 5～65重量%、密度が $895\text{ kg/m}^3$ 未満のエチレン・ $\alpha$ -オレフィンランダム共重合体 (B) 1～35重量%及び密度が $895\text{ kg/m}^3$ 以上のエチレン系重合体 (C) 10～85重量% (全体で100重量%) とのエチレン系重合体組成物 (D) からなる易開封性樹脂組成物及びそのフィルム。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 3 - 0 2 4 6 0 0
受付番号	5 0 3 0 0 1 6 0 9 3 7
書類名	特許願
担当官	第一担当上席 0 0 9 0
作成日	平成 1 5 年 2 月 3 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】	平成15年 1月31日
-------	-------------

次頁無

特願 2003-024600

出願人履歴情報

識別番号

[000174862]

1. 変更年月日 1990年 8月 6日  
[変更理由] 新規登録  
住 所 東京都千代田区霞が関3丁目2番5号  
氏 名 三井・デュポンポリケミカル株式会社
2. 変更年月日 2003年11月 5日  
[変更理由] 住所変更  
住 所 東京都港区東新橋1丁目5番2号  
氏 名 三井・デュポンポリケミカル株式会社

特願 2 0 0 3 - 0 2 4 6 0 0

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 2 2 0 0 9 9 ]

1. 変更年月日

1 9 9 8 年 8 月 2 7 日

[変更理由]

住所変更

住 所

東京都中央区京橋一丁目 3 番 3 号

氏 名

東セロ株式会社